

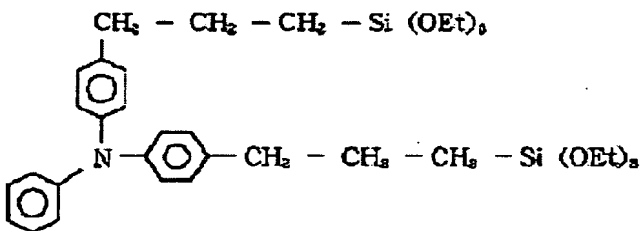
# ORGANIC LUMINESCENT ELEMENT

**Patent number:** JP2000306669  
**Publication date:** 2000-11-02  
**Inventor:** SENOO AKIHIRO; UENO KAZUNORI; MASHITA SEIJI  
**Applicant:** CANON KK  
**Classification:**  
**- international:** *C09K11/06; H05B33/14; H05B33/22; C09K11/06; H05B33/14; H05B33/22; (IPC1-7): H05B33/14; C09K11/06; H05B33/22*  
**- european:**  
**Application number:** JP19990111832 19990420  
**Priority number(s):** JP19990111832 19990420

**Report a data error here**

## Abstract of JP2000306669

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a luminescent element having high luminance light output by forming at least one of layers containing organic compound sandwiched between a pair of electrodes comprising a positive electrode and a negative electrode as a film formed from an organic compound simple substance containing one or more trialkoxysilyl groups in molecule or combination with trialkoxysilane in a sol gel method. **SOLUTION:** An organic compound containing at least one or more trialkoxysilyl group in a molecule is preferably a hole transportation compound, a luminescent compound, or an electron transportation



compound. Two or more trialkoxysilyl groups are preferably contained in an organic compound molecule, and triethoxysilyl groups or trimethoxysilyl groups are desired. An organic compound simple substance having the trialkoxysilyl groups or a sol liquid containing this organic compound and trialkoxysilane is adjusted, a sol film is formed in a spin coat method or the like, and a gel film is formed by thermal treatment. The compound is illustrated by a formula.

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2000-306669  
(P2000-306669A)

(43) 公開日 平成12年11月2日 (2000.11.2)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード (参考)
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B 3 K 0 0 7
C 0 9 K 11/06	6 6 0	C 0 9 K 11/06	6 6 0
H 0 5 B 33/22		H 0 5 B 33/22	D B

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 28 頁)

(21) 出願番号 特願平11-111832  
(22) 出願日 平成11年4月20日 (1999.4.20)

(71) 出願人 000001007  
キヤノン株式会社  
東京都大田区下丸子3丁目30番2号  
(72) 発明者 妹尾 章弘  
東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤ  
ノン株式会社内  
(72) 発明者 上野 和則  
東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤ  
ノン株式会社内  
(74) 代理人 100069017  
弁理士 渡辺 徳廣

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機発光素子

(57) 【要約】

【課題】 低い印加電圧で高輝度な発光が得られ、耐久性にも優れた有機発光素子を提供する。

【解決手段】 陽極及び陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に挟持された一または複数の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層は、分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物単体から、あるいは分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物とアルコキシシランからゾルゲル法により作成した膜から成ることを特徴とする有機発光素子。

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 陽極及び陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に挟持された一または複数の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層は、分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物単体から、あるいは分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物とアルコキシシランからゾルゲル法により作成した膜から成ることを特徴とする有機発光素子。

【請求項2】 前記分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物がホール輸送性化合物である請求項1記載の有機発光素子。

【請求項3】 前記分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物が発光性化合物である請求項1記載の有機発光素子。

【請求項4】 前記分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物が電子輸送性化合物である請求項1記載の有機発光素子。

【請求項5】 前記分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物が、分子内に2個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物である請求項1乃至4のいずれかの項に記載の有機発光素子。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機発光素子に関し、詳しくは有機化合物からなる薄膜に電界を印加することにより光を放出する有機発光素子に関する。

##### 【0002】

【従来の技術】有機発光素子は、陽極と陰極間に蛍光性有機化合物を含む薄膜を挟持させて、各電極から電子およびホール（正孔）を注入することにより、蛍光性化合物の励起子を生成させ、この励起子が基底状態にもどる際に放射される光を利用する素子である。

【0003】1987年コダック社の研究（Appl. Phys. Lett. 51, 913（1987））では、陽極にITO、陰極にマグネシウム銀の合金をそれぞれ用い、電子輸送材料および発光材料としてアルミニウムキノリノール錯体を用い、ホール輸送材料にトリフェニルアミン誘導体を用いた機能分離型2層構成の素子で、10V程度の印加電圧において1000cd/m<sup>2</sup>程度の発光が報告されている。関連の特許としては、米国特許第4,539,507号、米国特許第4,720,432号、米国特許第4,885,211号等が挙げられる。

【0004】また、蛍光性有機化合物の種類を変えることにより、紫外から赤外までの発光が可能であり、最近では様々な化合物の研究が活発に行われている。例えば、米国特許第5,151,629号、米国特許第5,

409,783号、米国特許第5,382,477号、特開平2-247278号公報、特開平3-255190号公報、特開平5-202356号公報、特開平9-202878号公報、特開平9-227576号公報等に記載されている。

【0005】さらに、上記のような低分子材料を用いた有機発光素子の他にも、共役系高分子を用いた有機発光素子が、ケンブリッジ大学のグループ（Nature, 347, 539（1990））により報告されている。この報告ではポリフェニレンビニレン（PPV）を塗工系で成膜することにより、単層で発光を確認している。共役系高分子を用いた有機発光素子の関連特許としては、米国特許第5,247,190号、米国特許第5,514,878号、米国特許第5,672,678号、特開平4-145192号公報、特開平5-247460号公報等が挙げられる。

【0006】このように有機発光素子における最近の進歩は著しく、その特徴は低印加電圧で高輝度、発光波長の多様性、高速応答性、薄型、軽量の発光デバイス化が可能であることから、広汎な用途への可能性を示唆している。

【0007】しかしながら、現状では更なる高輝度の光出力あるいは高変換効率が必要である。また、長時間の使用による経時変化や酸素を含む雰囲気気体や湿気などによる劣化等の耐久性の面で未だ多くの問題がある。さらにはフルカラーディスプレイ等への応用を考えた場合の色純度の良い、青、緑、赤の発光が必要となるが、この問題に関してもまだ十分に解決されていない。

【0008】さらに、ゾルゲル法により、シリカマトリックス中にホール輸送材料および発光材料を分散させた報告例（第55回応用物理学会年次予稿集、Vol.1, 3, p1031, 1995年秋）があるが、十分な発光特性は得られていない。

##### 【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、このような従来技術の問題点を解決するためになされたものであり、極めて高効率で高輝度、高寿命の光出力を有する有機発光素子を提供することにある。また、発光波長に多様性があり、種々の発光色相を呈するとともに極めて耐久性のある有機発光素子を提供する事にある。さらには製造が容易でかつ比較的安価に作成可能な有機発光素子を提供する事にある。

##### 【0010】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、上述の課題を解決するために鋭意検討した結果、本発明を完成するに至った。

【0011】すなわち、本発明は、陽極及び陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に挟持された一または複数の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一

層は、分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物単体から、あるいは分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物とアルコキシシランからゾルゲル法により作成した膜から成ることを特徴とする有機発光素子である。

【0012】本発明では、電荷輸送性あるいは発光性を有する有機化合物を、シリカマトリックス中に共有結合を介して分散させることにより、極めて均一な分散状態の膜が得られる。また、シリカマトリックスに有機化合物を固定しているため、有機化合物同士の凝集、結晶化等は起こらず、極めて安定で耐久性に優れた有機発光素子を提供できる。

【0013】

【発明の実施の形態】本発明の有機発光素子は、陽極及び陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に挟持された一または複数の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層は、分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物単体から、あるいは分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物とアルコキシシランからゾルゲル法により作成した膜から成ることを特徴とするものである。

【0014】本発明においては、前記分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物は、ホール輸送性化合物、発光性化合物または電子輸送性化合物であるのが好ましい。

【0015】トリアルコキシシリル基としては、例えばトリエトキシシリル基、トリメトキシシリル基、トリイソプロポキシシリル基等が挙げられる。

【0016】また、有機化合物の分子内に含有されるトリアルコキシシリル基の数は、少なくとも1個以上であり、また2個以上でもよく、好ましくは2～4個である。

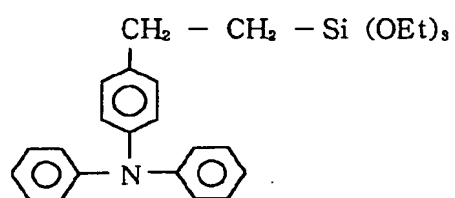
【0017】前記分子内に少なくとも一個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物はホール輸送性化合物として、例えばトリアリールアミン誘導体、テトラアリールビフェニルジアミン誘導体、スチルベン系アリールアミン誘導体、オリゴチオフエン誘導体、ポリシラン誘導体等のホール輸送性化合物にトリアルコキシシリル基を導入したものが挙げられる。次に、これらの代表例の例示化合物を下記に示す。ただし、これらの化合物に限定されるものではない。

【0018】例示化合物（ホール輸送性化合物）

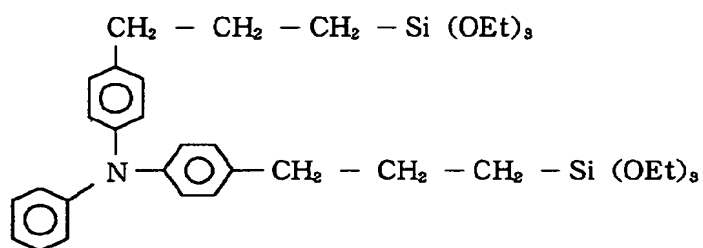
【0019】

【化1】

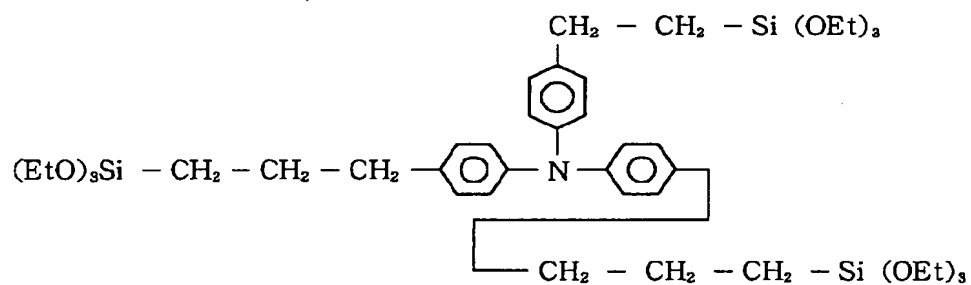
No. 1



No. 2



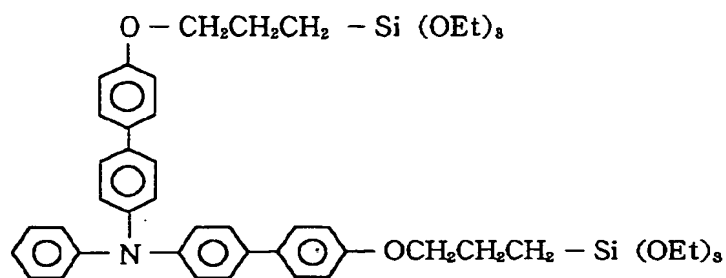
No. 3



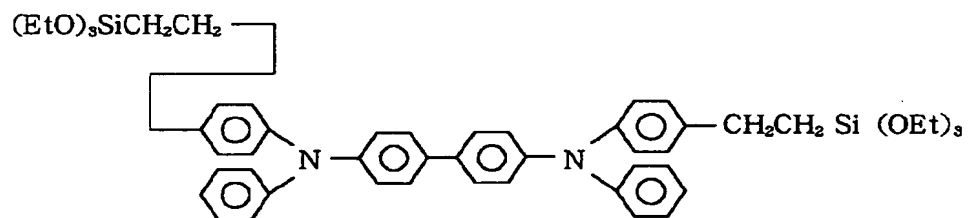
【0020】

【化2】

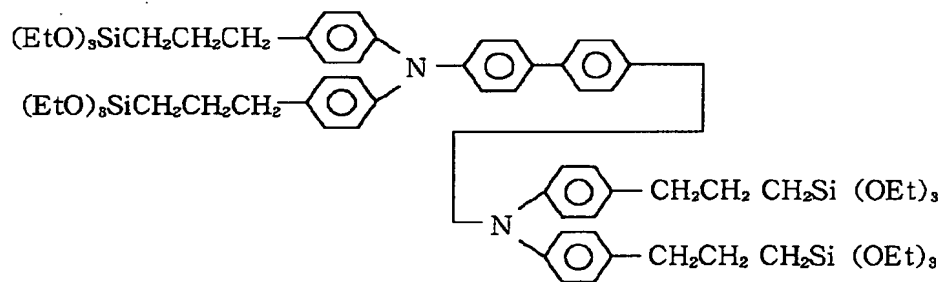
No. 4



No. 5



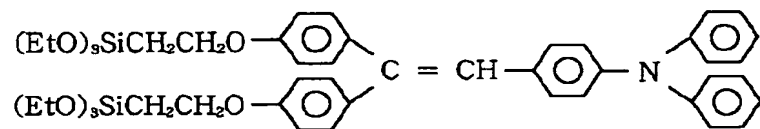
No. 6



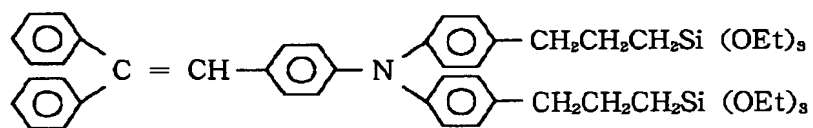
【0021】

【化3】

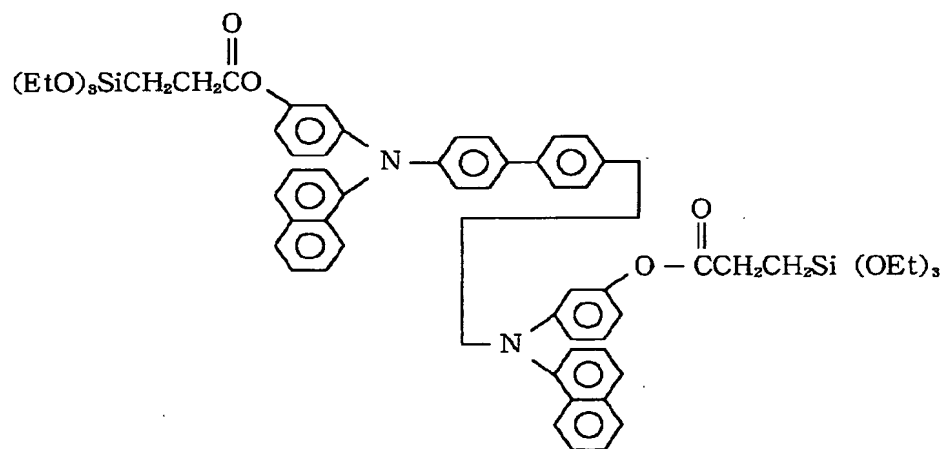
No. 7



No. 8



No. 9

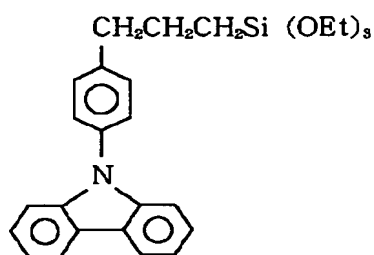


[0022]

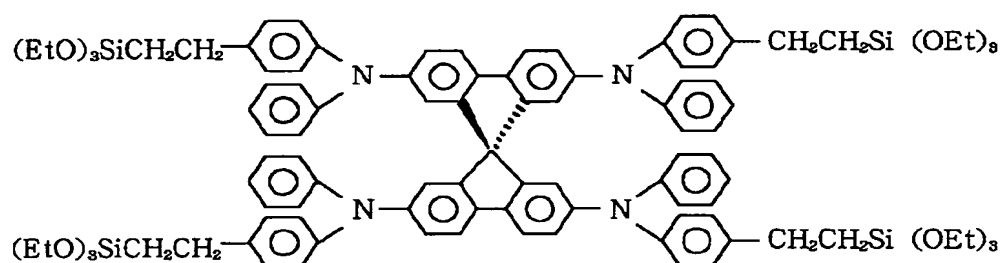
【化4】



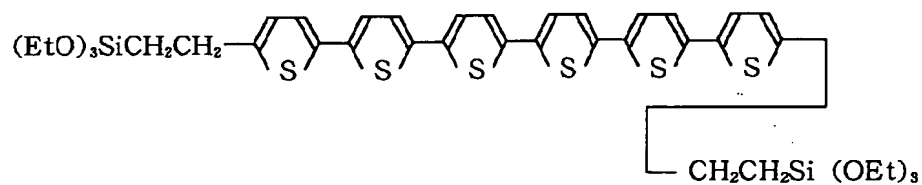
No. 10



No. 11



No. 12



【0023】また、前記分子内に少なくとも一個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物は電子輸送性化合物として、例えばフェニレンビニレン誘導体、ベンズオキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、ポリフェニレン誘導体、ピリジン誘導体、ピラジン誘導体、アゾメチン誘導体、フルオレノン誘導体、フルオニリデン誘導体、ペリレン誘導体等

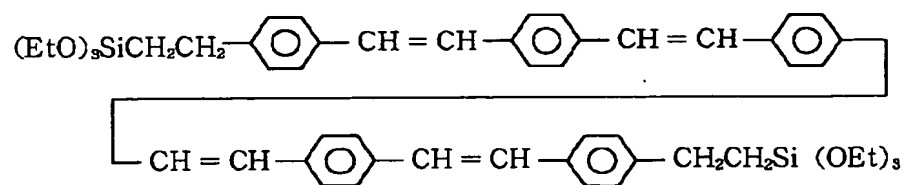
の電子輸送性化合物にトリアルコキシシリル基を導入したものが挙げられる。次に、これらの代表例の例示化合物を下記に示す。ただし、これらの化合物に限定されるものではない。

【0024】例示化合物（電子輸送材料）

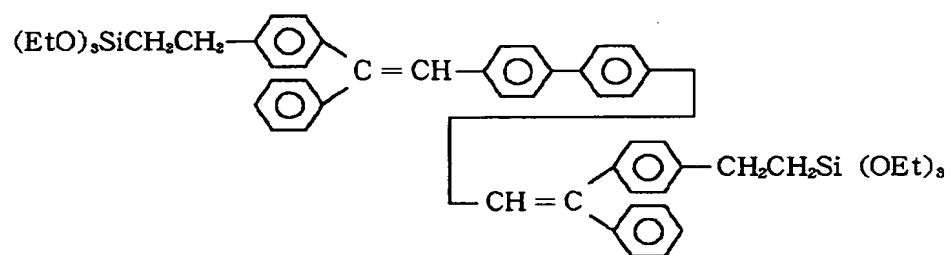
【0025】

【化5】

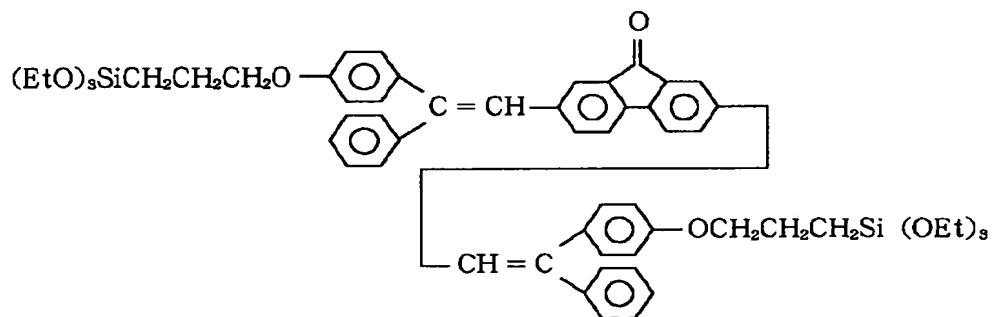
No. 13



No. 14



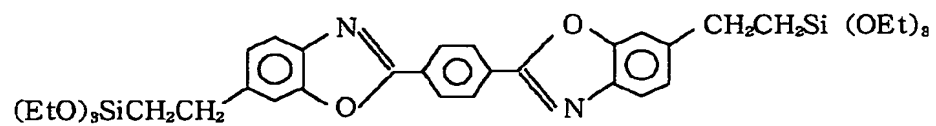
No. 15



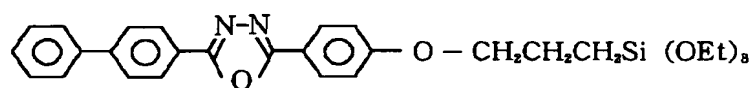
【 0 0 2 6 】

【化6】

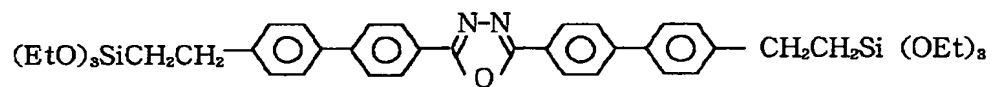
No. 16



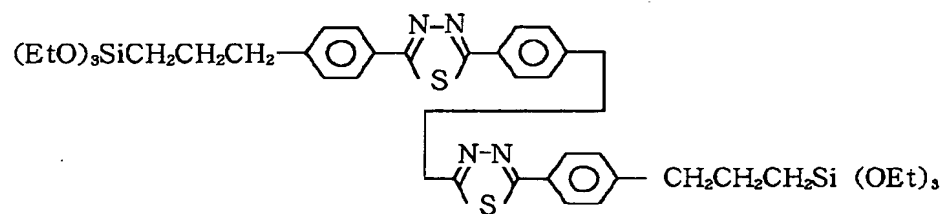
No. 17



No. 18



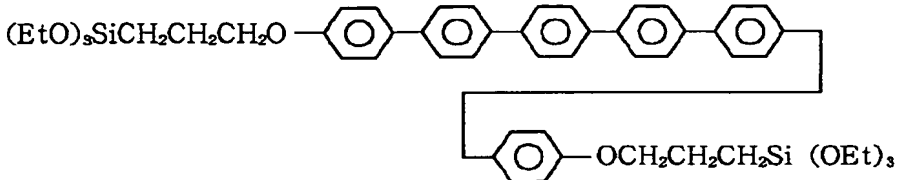
No. 19



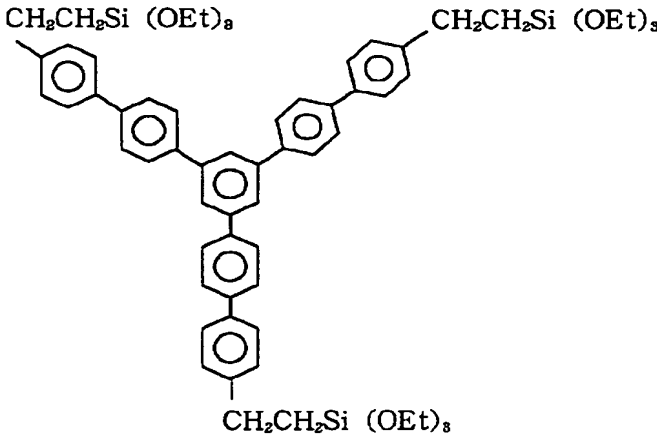
[0027]

[17]

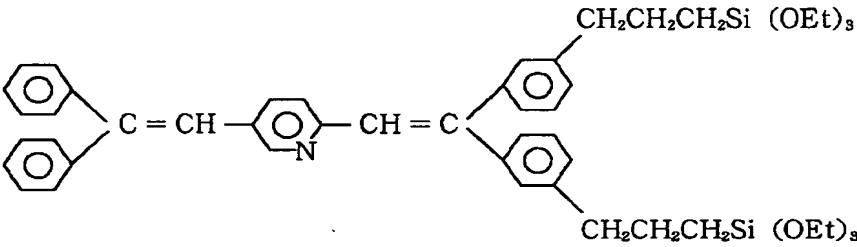
No. 20



No. 21



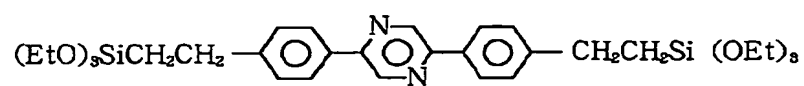
No. 22



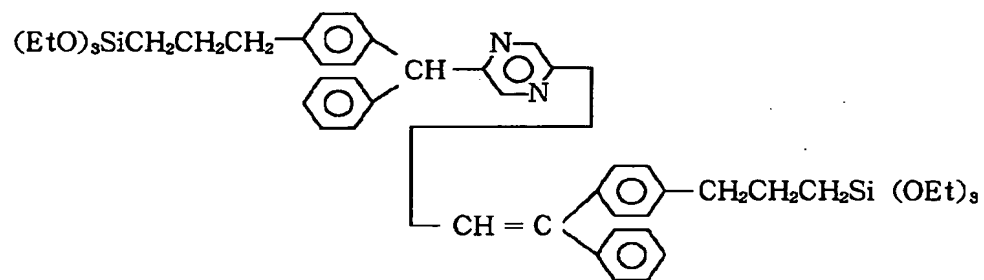
【 0 0 2 8 】

【化8】

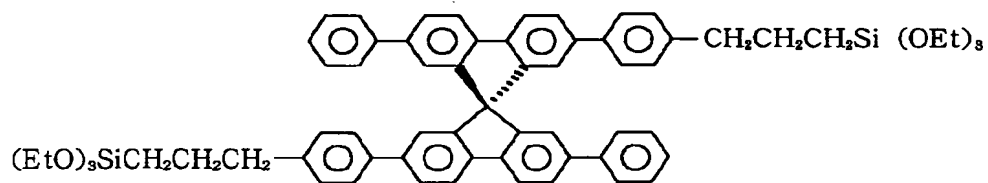
No. 23



No. 24



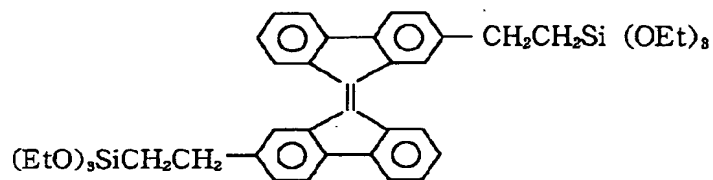
No. 25



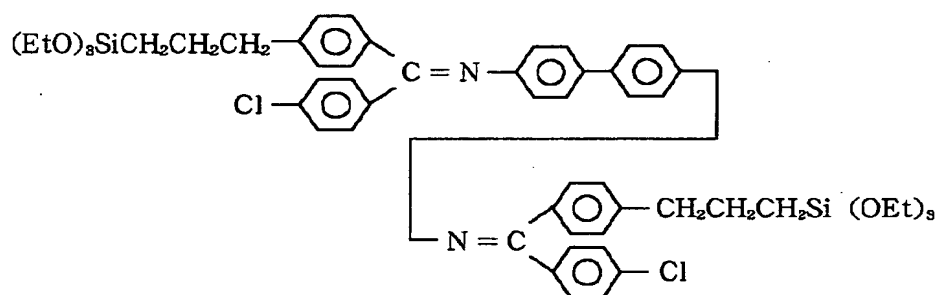
【0029】

【化9】

No. 26



No. 27



【0030】また、前記分子内に少なくとも一個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物は発光性化合物として、例えばフェニレンビニレン誘導体、縮合多環芳香族誘導体、キナクリドン誘導体、スチルベン誘導体、クマリン誘導体、ピラン誘導体、オキサゾリン誘導体、ポルフィリン誘導体、ピラジン誘導体、有機金属錯体類、ペリレン誘導体等の発光性化合物にトリアルコキ

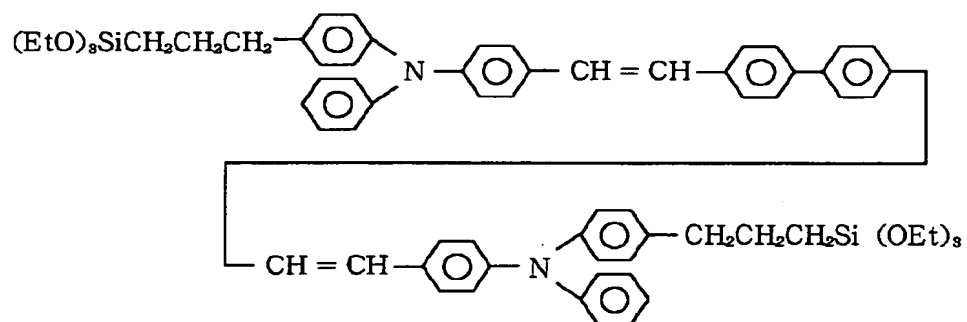
シシリル基を導入したものが挙げられる。次に、これらの代表例の例示化合物を下記に示す。ただし、これらの化合物に限定されるものではない。

【0031】例示化合物（発光材料）

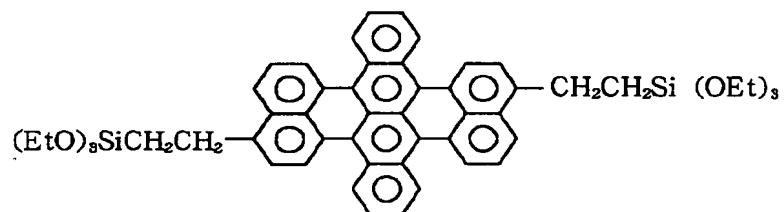
【0032】

【化10】

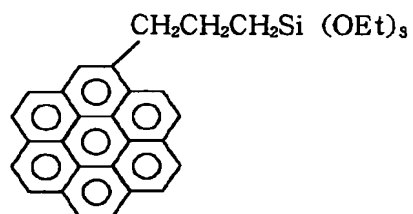
No. 28



No. 29



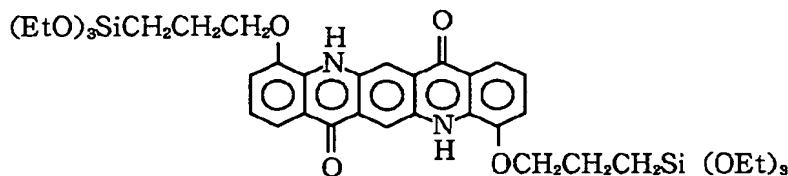
No. 30



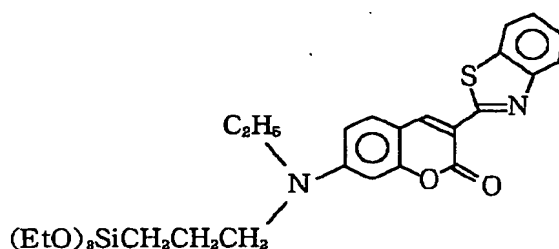
【 0 0 3 3 】

【 化 1 1 】

No. 31



No. 32



【0034】本発明の有機発光素子において、陽極及び陰極間に挟持された有機化合物を含む層の少なくとも一層は、①上記の分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物単体から、あるいは②上記の分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物とアルコキシシランからゾルゲル法により成膜される。

【0035】アルコキシシランには、例えばテトラエトキシシラン等が用いられる。

【0036】また、ゾルゲル法により成膜する方法は、例えば上記の分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物、あるいは該有機化合物とアルコキシシランを含有するゾル溶液を調整し、該ゾル溶液の溶工液を用いてスピンコート法等によりゾル膜を成膜し、熱処理を行いゲル膜を作成する成膜方法により行うことができる。

【0037】また、有機層のうち、他の有機化合物を含む層は、ゾルゲル法および真空蒸着法や溶液塗布法により陽極及び陰極の間に形成する。その有機層の厚みは $10\mu\text{m}$ より薄く、好ましくは $0.5\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $0.05\sim 0.5\mu\text{m}$ の厚みに薄膜化することが好ましい。

【0038】以下に、図面に沿って本発明を更に詳細に説明する。図1は本発明の有機発光素子の一例を示す断面図である。図1は基板1上に陽極2、発光層3及び陰極4を順次設けた構成のものである。ここで使用する発光素子はそれ自体でホール輸送能、エレクトロン輸送能及び発光性の性能を単一で有している場合や、それぞれの特性を有する化合物を混合して使う場合に有用であ

る。

【0039】図2は本発明の有機発光素子の他の例を示す断面図である。図2は基板1上に陽極2、ホール輸送層5、電子輸送層6及び陰極4を順次設けた構成のものである。この場合は発光物質はホール輸送性かあるいは電子輸送性のいずれかあるいは両方の機能を有している材料をそれぞれの層に用い、発光性の無い単なるホール輸送物質あるいは電子輸送物質と組み合わせて用いる場合に有用である。また、この場合発光層3はホール輸送層5あるいは電子輸送層6のいずれかから成る。

【0040】図3は本発明の有機発光素子の他の例を示す断面図である。図3は基板1上に陽極2、ホール輸送層5、発光層3、電子輸送層6及び陰極4を順次設けた構成のものである。これはキャリア輸送と発光の機能を分離したものであり、ホール輸送性、電子輸送性、発光性の各特性を有した化合物と適時組み合わせて用い、極めて材料選択の自由度が増すとともに、発光波長を異にする種々の化合物が使用できるため、発光色相の多様化が可能になる。さらに、中央の発光層に各キャリアあるいは励起子を有効に閉じこめて発光効率の向上を図ることも可能になる。

【0041】ただし、図1～3はあくまでごく基本的な素子構成であり、本発明の分子内に少なくとも1個以上のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物からなる層を用いた有機発光素子の構成はこれらに限定されるものではない。例えば、電極と有機層界面に絶縁性層を設ける、接着層あるいは干渉層を設ける、ホール輸送層がイオン化ポテンシャルの異なる2層から構成される、など多様な層構成をとることができる。



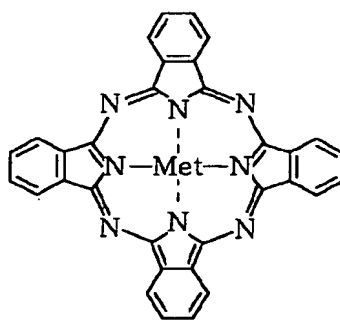
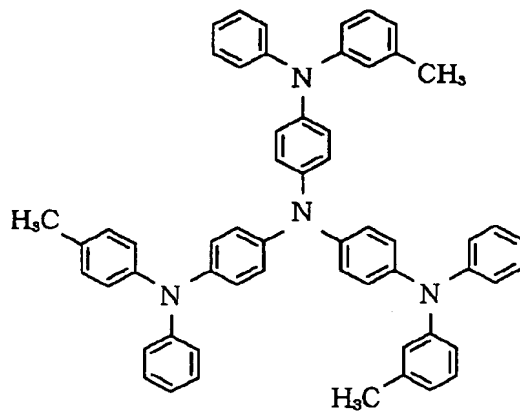
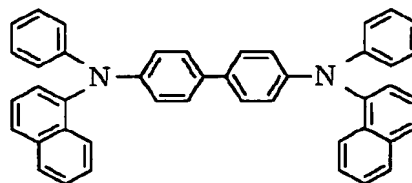
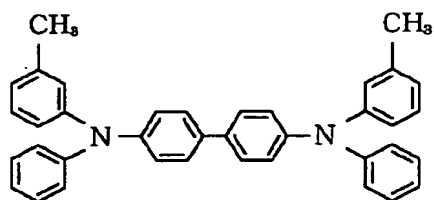
【0042】本発明において、ゾルゲル法により成膜される層は、ホール輸送層、電子輸送層、発光層のいずれにも適用することができるが、必要に応じてこれまで知られているホール輸送性化合物（例えば、下記の表1～4に示される化合物等）あるいは発光性化合物（例え

ば、下記の表5～8に示される化合物等）また電子輸送性化合物（例えば、下記の表9～11に示される化合物等）を必要に応じて一緒に使用することもできる。

【0043】

【表1】

# ホール輸送性化合物

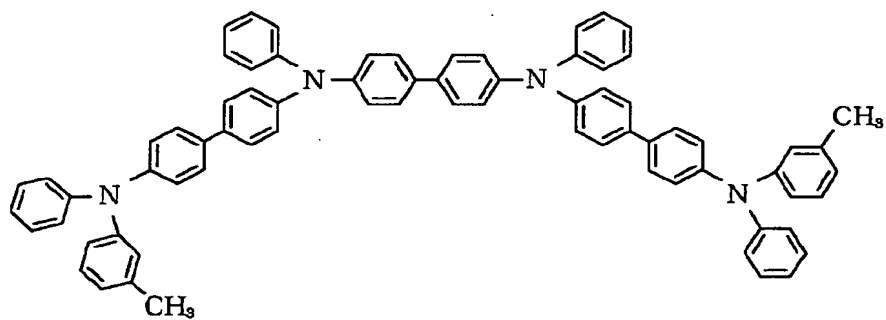
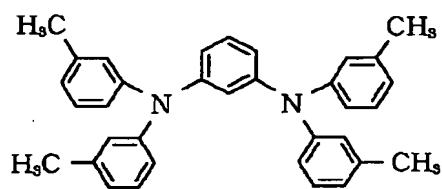
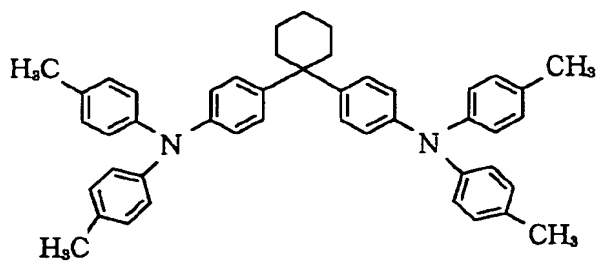


Met = Cu , Mg , AlCl , TiO<sub>2</sub> , SiCl<sub>12</sub> 等

【0044】

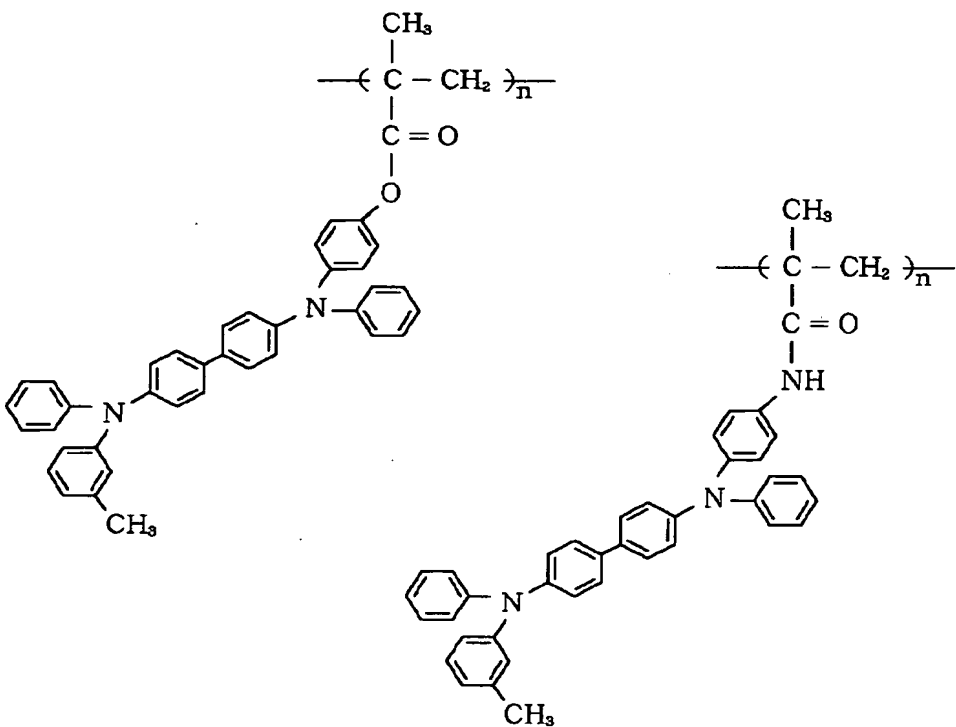
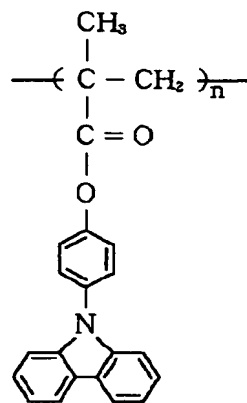
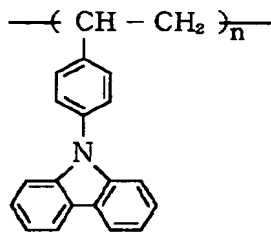
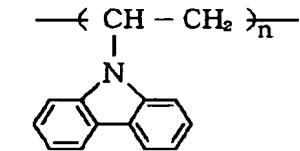
【表2】

ホール輸送性化合物

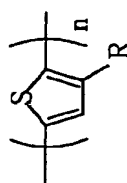
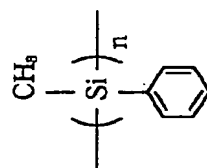
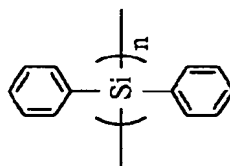
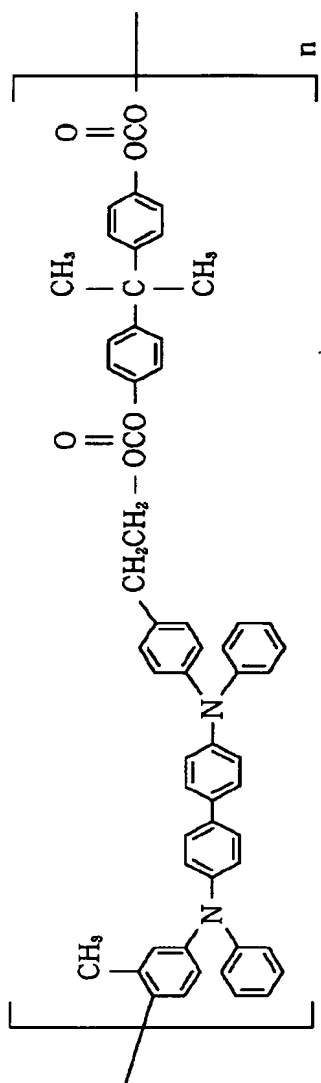


【 0 0 4 5 】

【 表 3 】



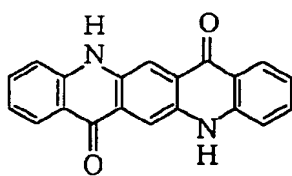
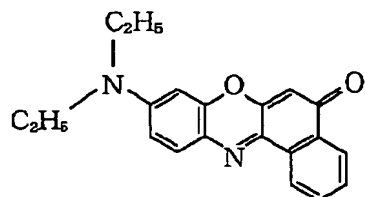
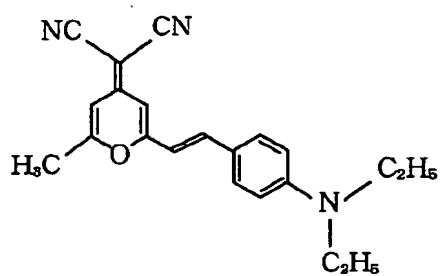
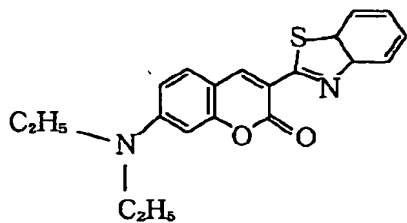
高分子系ホール輸送材料



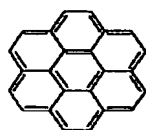
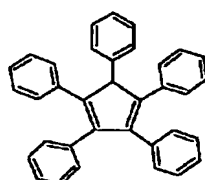
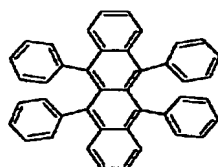
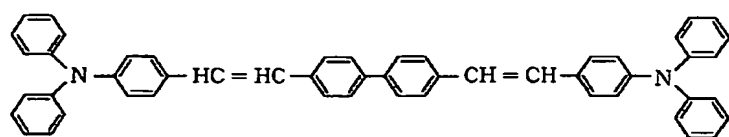
R : C<sub>6</sub>H<sub>13</sub> , C<sub>8</sub>H<sub>17</sub> , C<sub>12</sub>H<sub>25</sub>

【0047】

【表5】

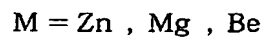
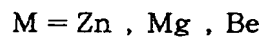


ドーパント発光材料

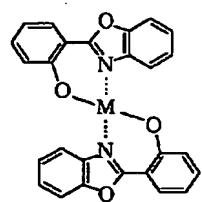


【 0 0 4 9 】

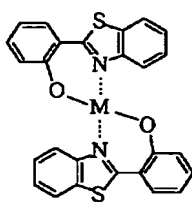
【 表 7 】



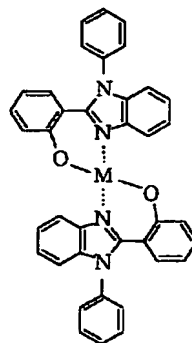
電子輸送性発光材料（有機金属錯体）



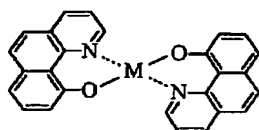
M = Zn , Mg , Be



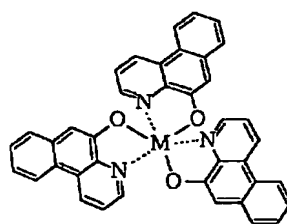
M = Zn , Mg , Be



M = Zn , Mg , Be



M = Zn , Mg , Be



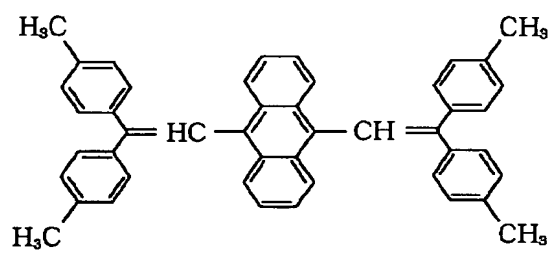
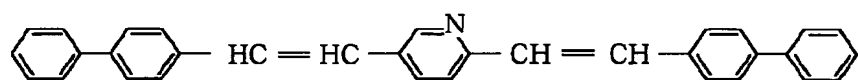
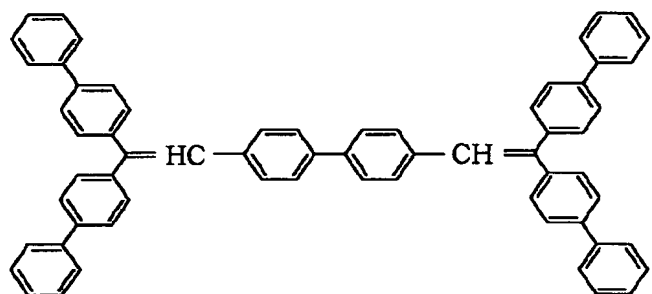
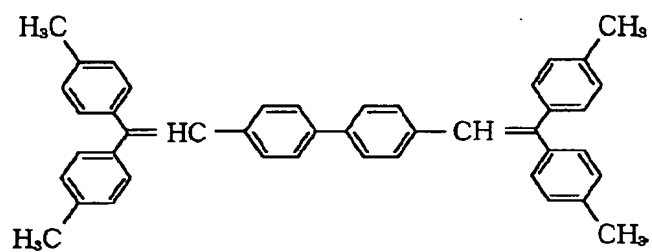
M = Al , Ga

【 0 0 5 1 】

【表 9】



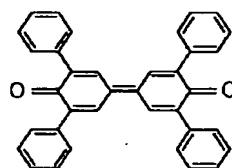
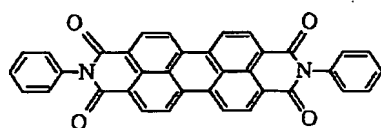
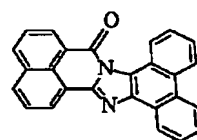
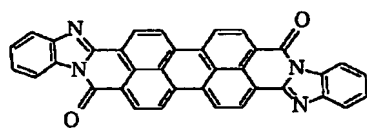
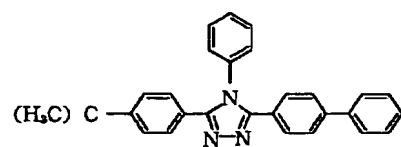
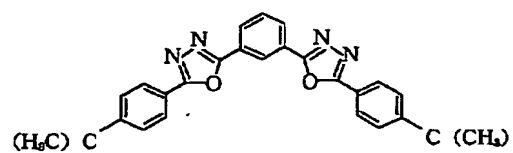
電子輸送性材料



【 0 0 5 2 】

【 表 1 0 】

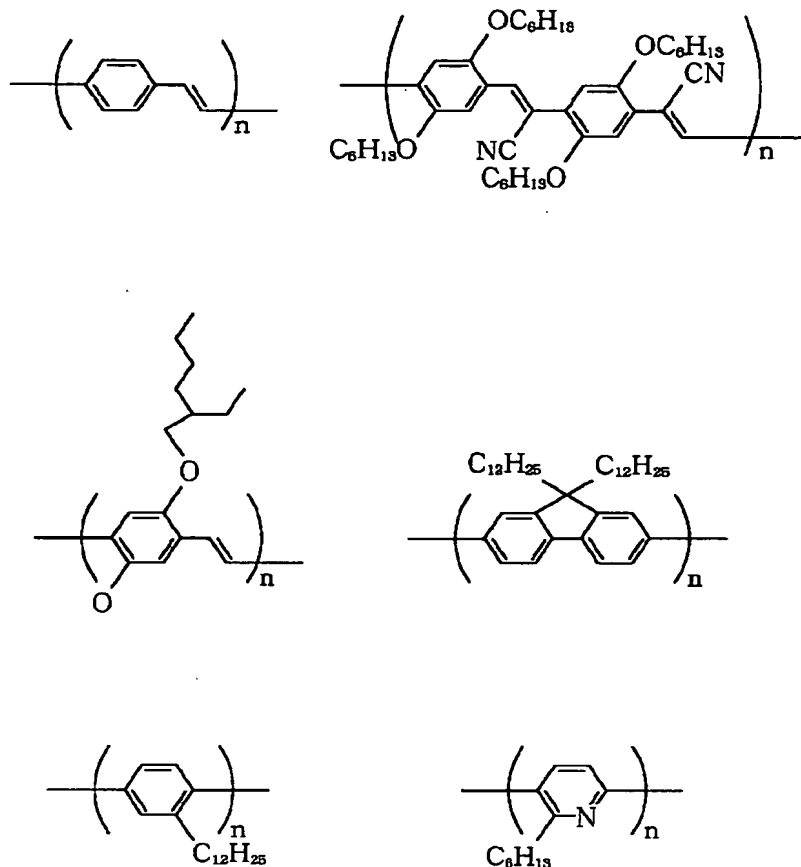
電子輸送性材料



【 0 0 5 3 】

【表 1 1】

## 高分子系電子輸送性材料



【００５４】本発明の有機発光素子において、ゾルゲル法により成膜される層以外の有機化合物からなる層は、一般には真空蒸着法あるいは、適当な溶媒に溶解させて塗布法により薄膜を形成する。特に塗布法で成膜する場合は、適当な結着樹脂と組み合わせて膜を形成することもできる。

【００５５】上記結着樹脂としては広範囲な結着性樹脂より選択でき、たとえばポリビニルカルバゾール樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリスチレン樹脂、アクリル樹脂、メタクリル樹脂、ブチラル樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ジアリルフタレート樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ポリスルホン樹脂、尿素樹脂等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。また、これらは単独または共重合体ポリマーとして１種または２種以上混合してもよい。

【００５６】陽極材料としては仕事関数になるべく大きなものがよく、例えば、金、白金、ニッケル、パラジウム、コバルト、セレン、バナジウム等の金属単体あるいはこれらの合金、酸化錫、酸化亜鉛、酸化錫インジウム

(ITO)、酸化亜鉛インジウム等の金属酸化物が使用できる。また、ポリアニリン、ポリピロール、ポリチオフェン、ポリフェニレンスルフィド等の導電性ポリマーも使用できる。これらの電極物質は単独で用いてもよく、複数併用することもできる。

【００５７】一方、陰極材料としては仕事関数の小さなものがよく、リチウム、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウム、アルミニウム、インジウム、銀、鉛、錫、クロム等の金属単体あるいは複数の合金として用いることができる。酸化錫インジウム(ITO)等の金属酸化の利用も可能である。また、陰極は一層構成でもよく、多層構成をとることもできる。

【００５８】本発明で用いる基板としては、特に限定するものではないが、金属製基板、セラミックス製基板等の不透明性基板、ガラス、石英、プラスチックシート等の透明性基板が用いられる。また、基板にカラーフィルター膜、蛍光色変換フィルター膜、誘電体反射膜などを用いて発色光をコントロールする事も可能である。

【００５９】なお、作成した素子に対して、酸素や水分等との接触を防止する目的で保護層あるいは封止層を設

けることもできる。保護層としては、ダイヤモンド薄膜、金属酸化物、金属窒化物等の無機材料膜、フッ素樹脂、ポリバラキシレン、ポリエチレン、シリコン樹脂、ポリスチレン樹脂等の高分子膜、さらには光硬化性樹脂等が挙げられる。また、ガラス、気体不透過性フィルム、金属などをカバーし、適当な封止樹脂により素子自体をパッケージングすることもできる。

#### 【0060】

【実施例】以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

#### 【0061】実施例1

ガラス基板上に酸化錫インジウム（ITO）をスパッタ法にて120nmの膜厚で成膜したものを透明導電性支持基板として用いた。これをアセトン、イソプロピルアルコール（IPA）で順次超音波洗浄し、IPAで煮沸洗浄、乾燥をした。さらに、UV/オゾン洗浄したものを透明導電性支持基板として使用した。

【0062】前記例示化合物No. 5を0.870g、テトラエトキシシラン0.230g、エタノール7.00g、純水1.00g、濃塩酸0.005gを混合し1時間攪拌した。これを一晩放置することによりゾル溶液を調整した。この溶工液を用いて、透明支持基板上にスピコート法（2000rpm）によりゾル膜を成膜し、窒素雰囲気下、室温で8時間放置し、80℃にて1時間、120℃にて2時間熱処理を行い70nmの膜厚のゲル膜を作成した。

【0063】さらに、アルミニウムキノリノール（Alq<sub>3</sub>）を真空蒸着法にて膜厚50nmの電子輸送兼発光層を形成した。蒸着時の真空度は $1.0 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速度は0.3nm/secの条件で成膜した。

【0064】次に、アルミニウムとリチウム（リチウム濃度1原子%）からなる蒸着材料を用いて、先ほどの有機層の上に、真空蒸着法により厚さ150nmの金属層膜を形成し、図2に示す構造の素子を作成した。蒸着時の真空度は $1.0 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速度は1.0～1.2nm/secの条件で成膜した。

【0065】この様にして得られた素子に、ITO電極を正極、Al-Li電極を負極にして、8Vの直流電圧を印加すると、 $2.5 \text{ mA/cm}^2$ の電流密度で電流が流れ、初期輝度 $120 \text{ cd/m}^2$ の緑色発光が観測された。

#### 【0066】実施例2

ガラス基板上に酸化錫インジウム（ITO）をスパッタ法にて120nmの膜厚で成膜したものを透明導電性支持基板として用いた。これをアセトン、イソプロピルアルコール（IPA）で順次超音波洗浄し、IPAで煮沸洗浄、乾燥をした。さらに、UV/オゾン洗浄したものを透明導電性支持基板として使用した。

【0067】前記例示化合物No. 14を0.890

g、前記例示化合物No. 28を0.106g、テトラエトキシシラン0.420g、エタノール7.00g、純水1.00g、濃塩酸0.005gを混合し1時間攪拌した。これを一晩放置することによりゾル溶液を調整した。この溶工液を用いて、透明支持基板上にスピコート法（2000rpm）によりゾル膜を成膜し、窒素雰囲気下、室温で8時間放置し、80℃にて1時間、120℃にて2時間熱処理を行い110nmの膜厚のゲル膜を作成した。

【0068】次に、アルミニウムとリチウム（リチウム濃度1原子%）からなる蒸着材料を用いて、先ほどの有機層の上に、真空蒸着法により厚さ150nmの金属層膜を形成し、図1に示す構造の素子を作成した。蒸着時の真空度は $1.0 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速度は1.0～1.2nm/secの条件で成膜した。

【0069】この様にして得られた素子に、ITO電極を正極、Al-Li電極を負極にして、13Vの直流電圧を印加すると、 $3.1 \text{ mA/cm}^2$ の電流密度で電流が流れ、初期輝度 $65 \text{ cd/m}^2$ の青色発光が観測された。

#### 【0070】実施例3

ガラス基板上に酸化錫インジウム（ITO）をスパッタ法にて120nmの膜厚で成膜したものを透明導電性支持基板として用いた。これをアセトン、イソプロピルアルコール（IPA）で順次超音波洗浄し、IPAで煮沸洗浄、乾燥をした。さらに、UV/オゾン洗浄したものを透明導電性支持基板として使用した。

【0071】前記例示化合物No. 3を1.50g、エタノール7.00g、純水1.00g、濃塩酸0.005gを混合し1時間攪拌した。これを一晩放置することによりゾル溶液を調整した。この溶工液を用いて、透明支持基板上にスピコート法（2000rpm）によりゾル膜を成膜し、窒素雰囲気下、室温で8時間放置し、80℃にて1時間、120℃にて2時間熱処理を行い、55nmの膜厚のゲル膜を作成した。

【0072】前記例示化合物No. 29を0.091g、テトラエトキシシラン0.210g、エタノール7.00g、純水1.00g、濃塩酸0.005gを混合し1時間攪拌した。これを一晩放置することによりゾル溶液を調整した。この溶工液を用いて、上記のホール輸送層を成膜した透明支持基板上にスピコート法（2000rpm）によりゾル膜を成膜し、窒素雰囲気下、室温で8時間放置し、80℃にて1時間、120℃にて2時間熱処理を行い、12nmの膜厚のゲル膜を作成した。

【0073】前記例示化合物No. 18を0.770g、テトラエトキシシラン0.210g、エタノール7.00g、純水1.00g、濃塩酸0.005gを混合し1時間攪拌した。これを一晩放置することによりゾル溶液を調整した。この溶工液を用いて、上記の透明支

持基板上にスピンコート法（2000rpm）によりゾル膜を成膜し、窒素雰囲気下、室温で8時間放置し、80℃にて1時間、120℃にて2時間熱処理を行い50nmの膜厚のゲル膜を作成した。

【0074】次に、アルミニウムとリチウム（リチウム濃度1原子%）からなる蒸着材料を用いて、先ほどの有機層の上に、真空蒸着法により厚さ150nmの金属層膜を形成し、図3に示す構造の素子を作成した。蒸着時の真空度は $1.0 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速度は1.0～1.2 nm/secの条件で成膜した。

【0075】この様にして得られた素子に、ITO電極を正極、Al-Li電極を負極にして、8Vの直流電圧を印加すると、 $4.1 \text{ mA/cm}^2$ の電流密度で電流が流れ、初期輝度 $370 \text{ cd/m}^2$ の黄色発光が観測された。

【0076】また、この素子を窒素雰囲気下80℃において、電流密度 $3.0 \text{ mA/cm}^2$ に保ち、100時間電圧を印加したところ、初期輝度 $160 \text{ cd/m}^2$ から100時間後輝度 $145 \text{ cd/m}^2$ と輝度劣化は非常に少なかった。

#### 【0077】比較例1

実施例1のホール輸送層に用いられる化合物を、例示化合物No. 5（0.870g）に変えて、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを用いた他は実施例1の素子と全く同様にして比較例1の素子を作成した。

【0078】この様にして得られた素子に、ITO電極

を正極、Al-Li電極を負極にして、20Vまで電圧を印加したが、20Vで絶縁破壊を起こすまで発光は確認されなかった。

#### 【0079】

【発明の効果】以上説明した様に、本発明のトリアルコキシシリル基を有する有機化合物単体から、あるいは該有機化合物とアルコキシシランからゾルゲル成膜法を用いて作成した層を有する有機発光素子は、実施例および比較例から示される通り、低い印加電圧で高輝度な発光が得られ、耐久性にも優れている。さらに、素子の作成も真空蒸着あるいはキャスティング法等を用いて作成可能であり、比較的安価で大面積の素子を容易に作成できる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明における有機発光素子の一例を示す断面図である。

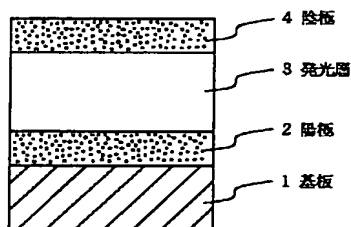
【図2】本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

【図3】本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

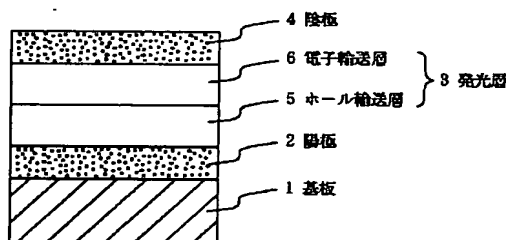
#### 【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 発光層
- 4 陰極
- 5 ホール輸送層
- 6 電子輸送層

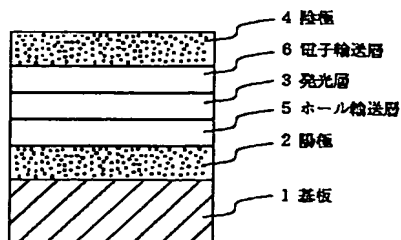
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

(72)発明者 真下 精二

東京都大田区下丸子 3 丁目 30 番 2 号 キャ

ノン株式会社内

F ターム(参考) 3K007 AB00 AB02 AB03 AB04 AB12

AB13 AB18 BB00 BB01 CA01

CB01 DA00 DB03 EB00 FA01